

KOKAI PATENT APPLICATION NO. HEI 3-281586

**ACRYLIC PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE COMPOSITION**

[Translated from Japanese]

[Translation No. LPX20139]

Translation Requested by: Eric Zilley

230-2E-22

Translation Provided by: Yoko and Bob Jasper  
Japanese Language Services  
16 Oakridge Drive  
White Bear Lake, MN 55110

(651) 426-3017 Fax (651) 426-8483  
e-mail: [bjasper@mediaone.net](mailto:bjasper@mediaone.net)

JAPANESE PATENT OFFICE (JP)

PATENT JOURNAL (A)

KOKAI PATENT APPLICATION NO. HEI 3-281586

Technical Indication Section

Int. Cl. <sup>5</sup> :	C 09 J 133/08
Identification code:	JDC
Sequence Nos. for Office Use:	8016-4J
Filing No.:	Hei 2-84686
Filing Date:	March 29, 1990
Publication Date:	December 12, 1991
No. of Claims:	1 (Total of 5 pages in the [foreign] document)
Examination Request:	Not filed

ACRYLIC PRESSURE-SENSITIVE ADHESIVE COMPOSITION

[*Akurirukei kan'atsusetchakuzai soseibutsu*]

Inventor(s):

Moto Nagano  
4-357 Nishi  
Suwamori-cho, Hamadera  
Sakai-shi, Osaka-fu

Yasuhiko Ohyama  
144 banchi, Minamida  
Jyodoji, Sakyo-ku  
Kyoto-shi, Kyoto-fu

Takahiro Kan  
2-2 Momoyama  
Shimamoto-cho, Mishima  
Osaka-fu

Akihiro Yamamoto  
4-1-101 Yugaoka  
Suma-ku, Kobe-shi  
Hyogo-ken

Keisuke Miyake  
1-14-29, Higashi  
Kagaya, Suminoe-ku  
Osaka-shi, Osaka-fu

Applicant(s):

Sekisui Chemical Ind.  
Ltd.  
2-4-4 Nishi Ten'man  
Kitaku, Osaka-shi  
Osaka-fu

*[There are no amendments to this patent.]*

*[In this translation, product names are spelled phonetically.]*

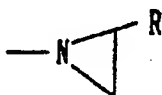
## Specification

### 1. Title of the invention

Acrylic pressure-sensitive adhesive composition

### 2. Claim of the invention

1. An acrylic pressure-sensitive adhesive composition containing an acrylic resin and aziridine compound, wherein the above-mentioned acrylic resin is a copolymer mainly comprising an alkyl acrylate and a vinyl compound having a functional group, and the acrylic pressure-sensitive adhesive composition is characterized by the fact that the above-mentioned aziridine compound is a compound containing at least two of the aziridine groups shown in general formula (I).



( I )

(Wherein, R is either -H or an alkyl group with 1-4 carbon atoms, and the hydrogen atom is not directly bonded to atoms other than the aziridine ring carbon adjacent to the N atom of the above-mentioned aziridine group.)

### 3. Detailed description of the invention

[Field of industrial application]

The present invention pertains to a composition capable of forming an acrylic pressure-sensitive adhesive suitable for labels, tapes, and sheets. The invention further pertains to a composition capable of forming an acrylic pressure-sensitive adhesive having excellent hot water resistance and wet heat resistance.

[Prior art]

Conventional natural rubbers and synthetic rubbers are being replaced with acrylic pressure-sensitive adhesives having high adhesion, weather resistance, wear resistance, etc. In general, acrylic pressure-sensitive adhesives exhibit high adhesion but cohesion is poor, and shear strength is insufficient. When labels and sheets are produced with the above-mentioned pressure-sensitive adhesives, bleeding of the pressure-sensitive adhesive from the edges of the labels or sheets poses a problem since die-cut quality is poor.

In order to eliminate the above-mentioned disadvantages, a method where a crosslinking agent such as a melamine compound, isocyanate compound, metal ion, or epoxy compound are mixed and crosslinking is carried out to increase the cohesion has been proposed.

[p. 2]

Among the above-mentioned crosslinking agents, in general, melamine compounds and epoxy compounds lack reactivity, thus, a high temperature and long reaction time are required for the crosslinking reaction. As a consequence, productivity is low. When a metal ion is used as a crosslinking agent, the cohesion of the pressure-sensitive adhesive produced is not adequate at high temperatures. When an isocyanate compound is used as a crosslinking agent, the isocyanate

compound is likely to be affected by moisture, thus, the degree of crosslinking becomes insufficient and stability of the adhesive properties of the pressure-sensitive adhesive produced is reduced.

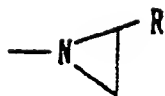
For crosslinking by an agent other than those listed above, use of an aziridine compound as a crosslinking agent for acrylic resins has been proposed. When an aziridine compound is used, productivity can be increased since the crosslinking reaction can be achieved in a short time at a low temperature. The pressure-sensitive adhesive produced exhibits high cohesion at high temperatures, and is less likely to be affected by moisture, and adhesive characteristics remain stable. Thus, an increase in viscosity or gelation during storage of the adhesive is absent. However, tapes and labels made with the above-mentioned pressure-sensitive adhesive lack hot water resistance and wet heat resistance, and when stored at high temperatures and high humidities, a reduction in adhesive properties is observed.

[Problems to be solved by the invention]

The present invention is to eliminate the above-mentioned disadvantages, and the purpose of the present invention is to produce an adhesive composition capable of forming an acrylic pressure-sensitive adhesive having excellent adhesive properties as well as excellent hot water resistance and wet heat resistance.

[Means to solve the problem]

The present invention is an acrylic pressure-sensitive adhesive composition characterized by the fact that the above-mentioned aziridine compound is a compound having at least two of the aziridine groups shown in general formula (I)



( I )

(Wherein, R is either -H or an alkyl group with 1-4 carbon atoms, and the hydrogen atom is not directly bonded with atoms other than an aziridine ring carbon adjacent to the N atom of the above-mentioned aziridine group) in an acrylic pressure-sensitive adhesive composition containing an acrylic resin and aziridine compound, and the above-mentioned acrylic resin is a copolymer mainly comprising an alkyl acrylate and a vinyl compound having a functional group.

In the acrylic pressure-sensitive adhesive composition of the present invention, in general, the acrylic resin is produced by copolymerization of an alkyl acrylate having an alkyl group with 4-12 carbon atoms and a vinyl compound having a functional group.

For examples of the above-mentioned alkyl acrylate, butyl acrylate, isobutyl acrylate, hexyl acrylate, 2-ethyl hexyl acrylate, nonyl acrylate, octyl acrylate, lauryl acrylate, etc. can be mentioned. Furthermore, in addition to the above-mentioned alkyl acrylates, methyl acrylate, ethyl acrylate, isopropyl acrylate, methyl methacrylate, ethyl methacrylate, 2-ethyl hexyl (meth)acrylate, stearyl acrylate, stearyl methacrylate, etc. can be added as needed. Furthermore, vinyl monomers such as styrene,  $\alpha$ -methyl styrene, and vinyl acetate can be copolymerized. In general, the mixing ratio of the above-mentioned alkyl acrylate having an alkyl group with 4-12 carbon atoms is in a range of 50-99.9 wt% for the total monomer that structures the acrylic resin. In the case when the mixing ratio of the alkyl acrylate is 50 wt% or below, the adhesive force of the acrylic resin is not adequate.

For the vinyl compound having the above-mentioned functional group, monomers containing a carboxylic acid such as acrylic acid, methacrylic acid, itaconic acid, fumaric acid, and maleic acid, monomers containing a hydroxyl group such as 2-hydroxy ethyl methacrylate, 2-hydroxy ethyl acrylate and 2-hydroxy butyl methacrylate, acrylic amide, methacrylic amide, N-methylol acryl amide, acrylonitrile, etc. can be mentioned. The vinyl compound containing a functional group is included at a mixing ratio of 0.1-15 wt% for the total monomer that comprises the acrylic resin.

[p. 3]

The acrylic resin included in the composition of the present invention is produced by solution polymerization of the above-mentioned alkyl acrylate, vinyl compound containing a functional group and other optional monomers in an appropriate solvent. Each of the above-mentioned alkyl acrylate, vinyl compound, and other monomers can be used independently or in combination.

The aziridine compound used in the present invention is a compound having at least two aziridine groups shown in general formula (I) in the molecule.



( I )

Wherein, R is either -H or an alkyl group with 1-4 carbon atoms, and the hydrogen atom is not directly bonded with atoms other than an aziridine ring carbon adjacent to the N atom of the above-mentioned aziridine group. The above-mentioned alkyl group may be a straight-chain or branched-chain.



For the above-mentioned compounds, N,N'-hexamethylene-1,6-bis(1-aziridine carboxamide), N,N'-diphenyl methane-4,4'-bis(1-aziridine carboxamide), N,N'-toluene-2,4-bis(1-aziridine carboxamide), triethylene melamine, bisisophthaloyl-1-(2-methyl aziridine), etc. can be mentioned. When aziridine compounds other than those listed above, for example, aziridine compounds where a hydrogen atom is directly bonded with the atom adjacent to the N atom of the aziridine group, for example, trimethylol propane-tri- $\beta$ -azilidinyl propionate, tetramethylol methane-tri- $\beta$ -azilidinyl propionate, trimethylol propane-tri- $\beta$ -(2-methyl aziridine)propionate, etc. are used, a significant reduction is observed in hot water resistance and wet heat resistance of the adhesive produced. It is desirable when the mixing ratio of the above-mentioned aziridine compound is in the range of 0.001-1 parts by weight for 100 parts by weight of the above-mentioned acrylic resin. When the mixing ratio of the aziridine compound is 0.001 parts by weight or below, effect of the crosslinking becomes inadequate; on the other hand, when the above-mentioned mixing ratio exceeds 1 part by weight, adhesive properties are likely to be reduced.

Furthermore, standard additives, for example, tackifiers antioxidants, colorants, fillers such as petroleum resins, terpene resins, coumarone-indene resins, and phenol resins can be included in the acrylic pressure-sensitive adhesive composition of the present invention.

The acrylic pressure-sensitive adhesive of the present invention is produced by mixing an aziridine compound with the above-mentioned acrylic resin. For example, the above-mentioned aziridine compound is added to a solution with the above-mentioned acrylic resin dissolved in it, or a reaction solution produced by polymerization of the above-mentioned acrylic resin. The aziridine compound acts as a crosslinking agent and crosslinking is carried out for the above-

mentioned acrylic resin. As a result, the cohesion of the pressure-sensitive adhesive produced is increased. Thus, excellent adhesive properties such as tenacity, cohesion and tack can be achieved in labels, sheets and tapes produced from the above-mentioned adhesive, as well as excellent hot water resistance and wet heat resistance.

#### [Application Examples]

The present invention is explained below in further detail with application examples.

In application examples, parts refers to parts by weight, and parts in the table is parts by weight for 100 parts by weight of the resin.

#### Application Examples 1-4

##### Composition of acrylic resin

n-butyl acrylate	50 parts
2-ethyl hexyl acrylate	40 parts
Vinyl acetate	5 parts
Acrylic acid	5 parts

73 parts of ethyl acetate and each of the above-mentioned substances were charged to a reactor equipped with a condenser tube, and the temperature was increased, and refluxing was carried out for 10 minutes and purging of oxygen was done. Subsequently, benzoyl peroxide diluted with an ethyl acetate solution (0.5 parts/3.7 parts) was added dropwise, and a reaction was carried out under reflux for 5 hours; then, benzoyl peroxide diluted with an ethyl acetate solution (0.3 parts/3 parts) was added dropwise, and aging was carried out for 2 hours. The solid

parts of the resin solution produced as described above was 49.5%, and the viscosity was 20,000 cps.

The above resin solution was mixed with the aziridine compound shown in Table I and production of an acrylic pressure-sensitive adhesive solution was achieved. The acrylic pressure-sensitive adhesive solution was coated onto a polyester film with a thickness of 25  $\mu\text{m}$  to form a thickness of 25  $\mu\text{m}$  after coating, drying was then done at a temperature of 110°C for 4 minutes and a tape was produced.

[p. 4]

The resulting pressure-sensitive adhesive tape was stored at a temperature of 40°C for 24 hours and tests were made according to the methods described below. And the results are shown in Table I below.

Adhesion: According to the specification of JIS Z0237, a tape with a width of 15 mm is bonded to SUS-304, and the 180° peel strength was measured after 20 minutes. The pull rate is 300 mm/min.

Tenacity: According to the specification of JIS Z0237, 20 x 20 mm of tape is applied to SUS-304, placed in a constant air chamber kept at 40°C and 1 kg load is applied. Shearing of the tape after 1 hour (or drop time) was measured.

Ball tack value: The measurement was made according to the J. Dow method (20°C), and shown in terms of x/32 inch.

Hot water resistance: Measured according to the specification of JIS Z0237; a 20 x 20 mm tape is applied to SUS-304, after 20 minutes, the sample is immersed in tap water at 60°C and left overnight. The sample is then dried and placed in a constant air chamber kept at 40°C

and the tenacity is measured according to the above-mentioned method.

Wet heat resistance: The tape is stored under 80°C and 95% RH for 1 week.

Subsequently, the tenacity is measured according to the method described above.

The abbreviations in Table I and Table II below and the aziridine compounds they represent are listed below.

HDU: N,N'-hexamethylene-1,6-bis(1-aziridine carboxy amide)

MDEI: N,N'-diphenyl methane-4,4'-bis(1-aziridine carboxy amide)

TEM: Triethylene amine

BIA: Bisisophthaloyl-1-(2-methylaziridine)

TAZM: Trimethylol propane-tri- $\beta$ -aziridine propionate

TAZO: Trimethylol methane- $\beta$ -azilidinyl propionate

TAP: Trimethylol propane-tri- $\beta$ -(2-methylaziridine) propionate

#### Comparative Examples 1-4

The aziridine compounds listed in Table I were used and treatments were carried out as in the case of Application Examples 1-4.

#### Application Examples 5-8

##### Composition of acrylic resin

Ethyl acrylate	10 parts
2-ethylhexyl acrylate	80 parts
Vinyl acetate	5 parts
Itaconic acid	5 parts

The composition of the acrylic resin was changed as shown above, and toluene was not added and production of resin solution with a solid parts of 50.0% and viscosity of 20,000 cps was produced as in Application Example 1.

The above-mentioned resin solution and aziridine compounds listed in Table II were used and acrylic pressure-sensitive adhesive solutions were prepared. Furthermore, tapes were produced as in Application Example 1 with the acrylic pressure-sensitive adhesive solutions, and the properties of the resulting tapes were measured. The results obtained are shown in Table II.

#### Comparative Examples 5 and 6

The aziridine compounds listed in Table II were used and treatment was done as in Application Examples 5 and 6.

(Blank below)

Table I

		Aziridine compound		Properties				
		Name	Parts	Adhesive properties			Hot water resistance (mm)	Wet heat resistance (mm)
				SP cohesion (g/15 mm)	Tenacity (mm)	Ball tack		
Application Examples	1	H DU	0.05	900	0.3	17	0.3	0.3
	2	H DU	0.5	700	0.3	15	0.2	0.0
	3	M DEI	0.2	700	0.3	17	0.2	0.2
	4	T EM	0.2	600	0.2	15	0.1	0.1
Comparative Examples	2	T AZM	0.2	800	0.2	17	Peeled after 1 minute	Peeled after 1 minute
	2	T AZM	1.0	400	0.0	17	Peeled after 1 minute	Peeled after 1 minute
	2	T AZM	0.2	700	0.1	16	Peeled after 1 minute	Peeled after 1 minute
	4	T AP	0.2	800	0.3	15	Peeled after 1 minute	Peeled after 1 minute

[p. 5]

Table II

		Aziridine compound		Properties				
		Name	Parts	Adhesive properties			Hot water resistance (mm)	Wet heat resistance (mm)
				SP cohesion (g/15 mm)	Tenacity (mm)	Ball tack		
Application Examples	5	HDU	0.05	1100	0.3	17	0.2	0.3
	6	HDU	0.3	800	0.1	15	0.1	0.1
	7	MDEI	0.3	1000	0.1	15	0.2	0.1
	8	BIA	0.3	700	0.2	15	0.2	0.2
Comparative Examples	5	TAZM	0.1	1000	0.2	17	Peeled after 1 minute	Peeled after 1 minute
	6	TAZO	0.2	800	0.1	17	Peeled after 1 minute	Peeled after 1 minute

## (Effect of Invention)

As described above, according to the present invention, an acrylic pressure-sensitive adhesive composition capable of producing a pressure-sensitive adhesive having excellent adhesive properties as well as hot water resistance and wet heat resistance can be produced. The pressure-sensitive adhesive produced by the present invention can be widely used as an acrylic pressure-sensitive adhesive composition suitable for labels, tapes, and sheets.

The end

Applicant: Sekisui Chemical Ind., Ltd.

Agent: Kaoru Torata

## ⑫ 公開特許公報(A) 平3-281586

⑤ Int. Cl.<sup>5</sup>

C 09 J 133/08

識別記号

JDC

庁内整理番号

8016-4J

④ 公開 平成3年(1991)12月12日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全5頁)

⑥ 発明の名称 アクリル系感圧接着剤組成物

⑦ 特 願 平2-84686

⑧ 出 願 平2(1990)3月29日

⑨ 発 明 者	長 野 基	大阪府堺市浜寺諏訪森町西4丁357番地
⑩ 発 明 者	大 山 康彦	京都府京都市左京区浄土寺南田町144番地
⑪ 発 明 者	寛 鷹 鷹	大阪府三島郡島本町百山2丁目2番
⑫ 発 明 者	山 本 明弘	兵庫県神戸市須磨区友ヶ丘4丁目1番101号
⑬ 発 明 者	三 宅 啓介	大阪府大阪市住之江区東加賀屋1丁目14番29号
⑭ 出 願 人	積水化学工業株式会社	大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

アクリル系感圧接着剤組成物

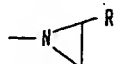
## 2. 特許請求の範囲

1. アクリル樹脂およびアジリジン化合物を含有し、

該アクリル樹脂が主としてアクリル酸アルキルエステルと、官能基を有するビニル化合物とから得られる共重合体である、アクリル系感圧接着剤組成物において、

該アジリジン化合物が1分子中に下式(1)で示されるアジリジン基を2個以上有する化合物であることを特徴とする、

アクリル系感圧接着剤組成物。



(1)

(ここで、Rは-Hまたは炭素数が1~4のアルキル基であり、かつ該アジリジン基のN原子に隣接するアジリジン環炭素以外の原子には水素原子が直接結合していない。)

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、ラベル、テープ、シートなどに使用されるアクリル系感圧接着剤を形成し得る組成物に関する。特に、耐湿水性および耐湿熱性に優れたアクリル系感圧接着剤を形成し得る組成物に関する。

(従来の技術)

アクリル系感圧接着剤は、接着性、耐候性、耐久性などに優れているので、従来の天然ゴム、合成ゴム系に代わって使用されつつある。このアクリル系感圧接着剤は、粘着力には優れているが、一般に凝集力に劣り、高い剪断応力に耐えられないという欠点を有している。上記感圧接着剤を用いてラベル、シートなどを作成した場合には、打ち抜き加工性に劣るため、感圧接着剤がラベルやシートの周囲からしみ出すなどの欠点がある。

このような欠点を解消するために、メラミン化合物、イソシアネート化合物、金属イオン、エポキシ化合物などの架橋剤を配合してアクリル樹脂



を架橋させて凝集力を高めることが提案されている。

上記架橋剤のうちメラミン化合物やエポキシ化合物は、一般に反応性に劣るため架橋反応にかなりの高温と長時間とを必要とする。そのため、生産性が低い。金属イオンを架橋剤として用いた場合は、得られた感圧接着剤は高温時の凝集力に劣るなどの問題が生じる。イソシアネート化合物を架橋剤として用いた場合は、該イソシアネート化合物が水分の影響を受け易いために、架橋の程度がばらつき、感圧接着剤の粘着物性が不安定となる。

上記以外の架橋剤として、アジリジン化合物をアクリル樹脂の架橋剤として用いることが提案されている。アジリジン化合物を配合した場合は、低温下で短時間のうちに架橋反応が行われるため、生産性を上げることができる。得られた感圧接着剤は高温時の凝集力にも優れ、かつ水分の影響を受けにくく、粘着物性が安定している。そのため、接着剤の保管中に増粘もしくはゲル化することが

ない。しかし、上記感圧接着剤を用いて製造したテープやラベルは、耐温水性および耐湿熱性に劣り、高温高湿下に放置すると粘着物性が低下する。(発明が解決しようとする課題)

本発明は上記欠点を解決するものであり、その目的とするところは、粘着物性に優れ、かつ耐温水性および耐湿熱性に優れたアクリル系感圧接着剤を形成し得る接着剤組成物を提供することにある。

(課題を解決するための手段)

本発明のアクリル系感圧接着剤組成物は、アクリル樹脂およびアジリジン化合物を含有し、該アクリル樹脂が主としてアクリル酸アルキルエステルと、官能基を有するビニル化合物とから得られる共重合体であって、該アジリジン化合物が1分子中に下式(1)で示されるアジリジン基を2個以上有する化合物であり、そのことにより上記目的が達成される。



(ここで、Rは-Hまたは炭素数が1~4のアルキル基であり、かつ該アジリジン基のN原子に隣接する、アジリジン環炭素以外の原子には水素原子が直接結合していない。)

本発明のアクリル系感圧接着剤組成物において、アクリル樹脂は、一般に炭素数4~12のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルと、官能基を有するビニル化合物とを共重合させて得られる。

上記アクリル酸アルキルエステルとしては、例えばブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、ヘキシルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、ノニルアクリレート、オクチルアクリレート、ラウリルアクリレートなどがあげられる。必要に応じて上記以外のアクリル酸アルキルエステルとして、メチルアクリレート、エチルアクリレート、イソプロピルアクリレート、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート、ステアリルアクリレート、ステアリルメタクリレートなどを加

えることも可能である。さらにスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、酢酸ビニルなどのビニルモノマーを共重合することも可能である。上記炭素数4~12のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルの含有割合は、一般にアクリル樹脂を構成するモノマー全体の50~99.9重量%である。アクリル酸アルキルエステルの含有量が50重量%未満の場合には、アクリル樹脂の粘着力が低い。

上記官能基を有するビニル化合物としては、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、フマル酸、マレイン酸などのカルボン酸含有モノマー；2-ヒドロキシエチルメタクリレート、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシブチルメタクリレートなどの水酸基含有モノマー；アクリルアミド、メタクリルアミド、N-メチロールアクリルアミド、アクリロニトリルなどがあげられる。官能基を有するビニル化合物は、アクリル樹脂を構成するモノマー全体の0.1~15重量%の割合で含有される。本発明の組成物に含有されるアクリル樹脂は、上記アクリル酸アルキルエステル、官能基

を有するビニル化合物および必要に応じて他のモノマーを、例えば適当な溶剤に溶解させて溶液重合により重合させて得られる。上記アクリル酸アルキルエステル、ビニル化合物および他のモノマーは、それぞれ1種もしくはそれ以上が用いられ得る。

本発明において用いられるアジリジン化合物は、下記式(1)に示されるアジリジン基を1分子に2個以上有する化合物である。



ここで、Rは-Hまたは炭素数が1～4のアルキル基であり、かつ該アジリジン基のN原子に隣接するアジリジン環炭素以外の原子には水素原子が直接結合していない。上記アルキル基は直鎖であっても、もしくは分枝状であってもよい。

このような化合物としては、N,N'-ヘキサメチレン-1,6-ビス(1-アジリジンカルボキシアミド)、N,N'-ジフェニルメタン-4,4'-ビス(1-アジリジンカルボキシアミド)、N,N'-トルエン-2,4-ビス(

1-アジリジンカルボキシアミド)、トリエチレンメラミン、ビスイソフタロイル-1-(2-メチルアジリジン)などがあげられる。上記以外のアジリジン化合物、例えば、アジリジン基のN原子に隣接する原子に水素原子が直接結合しているようなアジリジン化合物、例えばトリメチロールプロパン-トリ-β-アジリジニルプロピオネート、テトラメチロールメタン-トリ-β-アジリジニルプロピオネート、トリメチロールプロパン-トリ-β-(2-メチルアジリジン)プロピオネートなど、を用いた場合には、得られる接着剤の耐温水性および耐湿熱性が非常に悪くなる。上記アジリジン化合物の配合量は、上記アクリル樹脂100重量部に対して、0.001～1重量部であることが好ましい。アジリジン化合物の配合量が0.001重量部より少ないと架橋の効果が不充分となり、1重量部を超えると、固くなり過ぎて粘着物性が損なわれる傾向があるからである。

本発明のアクリル系感圧接着剤組成物には、石油樹脂、テルペン樹脂、クマロン-インデン樹脂、

フェノール樹脂のような粘着付与剤、酸化防止剤、各種着色剤、老化防止剤、充填剤などの公知の添加剤が配合されていてもよい。

本発明によるアクリル系感圧接着剤は、上記アクリル樹脂にアジリジン化合物を配合して得られる。例えば、上記アクリル樹脂を溶剤に溶解させた溶液に、あるいは上記アクリル樹脂の重合により得られる反応液に、上記アジリジン化合物が添加される。アジリジン化合物は架橋剤として働き、該アクリル樹脂が架橋される。これにより得られる粘着剤の凝集力が向上する。従って、このようにして得られた接着剤を用いて製造されるラベル、シート、テープなどは保持力、粘着力、タックなどの粘着物性に優れ、かつ耐湿熱性および耐温水性に優れる。

(実施例)

以下に、本発明の実施例を説明する。

実施例において、部数は全て重量部を表し、表中の部数は樹脂100重量部に対する重量部を表す。

実施例1～4

#### アクリル樹脂の組成

n-ブチルアクリレート	50部
2-エチルヘキシルアクリレート	40部
酢酸ビニル	5部
アクリル酸	5部

冷却管を付けた反応容器に酢酸エチル73部と上記各材料をそれぞれ仕込み、昇温して10分間還流させて酸素を追い出した。次に、過酸化ベンゾイルの酢酸エチル希釈溶液(0.5部/3.7部)を滴下し、還流下で5時間反応させた後、さらに過酸化ベンゾイルの酢酸エチル希釈溶液(0.3部/3部)を滴下し、2時間の熟成を行った。次にトルエン20部を添加した。このようにして得られた樹脂溶液の固形分は49.5%、そして粘度は20,000cpsであった。

この樹脂溶液に表1に示すアジリジン化合物を配合して混合し、アクリル系感圧接着剤溶液を得た。得られたアクリル系感圧接着剤溶液を厚さ25μmのポリエステルフィルム上に塗布後の厚さが25μmになるように塗工した後、110℃で4分間乾燥してテープを作成した。

得られた粘着テープを40℃にて24時間放置した後、次の方法により各試験を行なった。その結果を表1に示す。

粘着力：JIS Z0237に準じて SUS-304にテープを15mm幅で貼り合わせ、20分後の180° 剥離強度を測定する。引っ張り速度は300mm/minとする。

保持力：JIS Z0237に準じて行なう。SUS-304に、テープを20×20mmで貼り合わせ、40℃の恒温槽内に入れ、1kgの荷重をかける。1時間後のテープのずれ（もしくは落下時間）を測定する。

ボールタック値：J. Dow法に準じて測定し（20℃）x/32インチで表示する。

耐湿水性：JIS Z0237に準じて行なう。SUS-304にテープを20×20mmで貼り合せ、20分後に、60℃の水道温水に浸漬し、一夜放置する。これを乾燥させた後、40℃の恒温槽に入れ、上記方法により保持力を測定する。

耐湿熱性：80℃および95%の雰囲気下にそれぞれテープを1週間放置する。次に、上記方法により保持力を測定する。

表1および後述の表2におけるアジリジン化合物の略記号は次の化合物を示す。

HOU：N,N'-ヘキサメチレン-1,6-ビス（1-アジリジンカルボキシアミド）

MOEI：N,N'-ジフェニルメタン-4,4'-ビス（1-アジリジンカルボキシアミド）

TEM：トリエチレンメラミン

BIA：ビスイソフタロイル-1-（2-メチルアジリジン）

TAZM：トリメチロールプロパン-トリ-β-アジリジプロピオネート

TAZO：トリメチロールメタン-トリ-β-アジリジニルプロピオネート

TAP：トリメチロールプロパン-トリ-β-（2-メチルアジリジン）プロピオネート

#### 比較例1～4

表1に記載のアジリジン化合物を使用したこと以外は実施例1～4と同様である。

#### 実施例5～8

アクリル樹脂の組成

エチルアクリレート	10部
2-エチルヘキシルアクリレート	80部
酢酸ビニル	5部
イタコン酸	5部

アクリル樹脂の組成を上記のように変えたことと、トルエンを添加しなかったこと以外は、実施例1と同様にして固形分50.0%、粘度20,000cpsの樹脂溶液を得た。

この樹脂溶液および表2に示すアジリジン化合物を用いてアクリル系感圧接着剤溶液を得た。これを用いて実施例1と同様にしてテープを作成し、テープの各物性を測定した。結果を表2に示す。

#### 比較例5および6

表2に記載のアジリジン化合物を使用したこと以外は実施例5および6と同様である。

（以下余白）

表1

	7-アジリジン化合物	物 性						
		名称	部 数	粘 着 物 性	粘 着 物 性		耐 湿 水 性 (mm)	耐 湿 熱 性 (mm)
					SP粘着力 (g/15mm)	保持力 (mm)		
実 施 例	1	HOU	0.05	900	0.3	17	0.3	0.3
	2	HOU	0.5	400	0.1	15	0.1	0.0
	3	MOEI	0.2	700	0.3	17	0.2	0.2
	4	TEM	0.2	600	0.2	15	0.1	0.1
比 較 例	1	TAZM	0.1	800	0.2	17	1分後落下	1分後落下
	2	TAZM	1.0	400	0.0	14	1分後落下	1分後落下
	3	TAZO	0.2	700	0.1	16	1分後落下	1分後落下
	4	TAP	0.2	800	0.3	15	1分後落下	1分後落下

(発明の効果)

本発明によれば、このように、粘着物性に優れ、かつ耐温水性および耐湿熱性に優れた感圧接着剤を形成し得るアクリル系感圧接着剤組成物が提供される。本発明による感圧接着剤は、ラベル、テープ、シートなどに使用され得るアクリル系感圧接着剤として広く利用され得る。

以 上

出願人 積水化学工業株式会社

代表者 廣 田 馨

表 2

	7列シ化合物	物 質 性				性	
		名称	部 数	粘 着 物 性		耐 温 水 性 (mm)	耐 湿 熱 性 (mm)
				SP粘着力 (g/15mm)	保持力 (mm)		
5	HDU	0.05		1,100	0.3	17	0.3
6	HDU	0.3		800	0.1	15	0.1
7	MOE1	0.1		1,000	0.2	15	0.1
8	BIA	0.3		700	0.2	15	0.2
5	TAZM	0.1		1,000	0.2	17	1分後落下
6	TAZO	0.2		800	0.1	17	1分後落下
実 施 例							
比 較 例							